

527058

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 9 月 23 日 (23.09.2004)

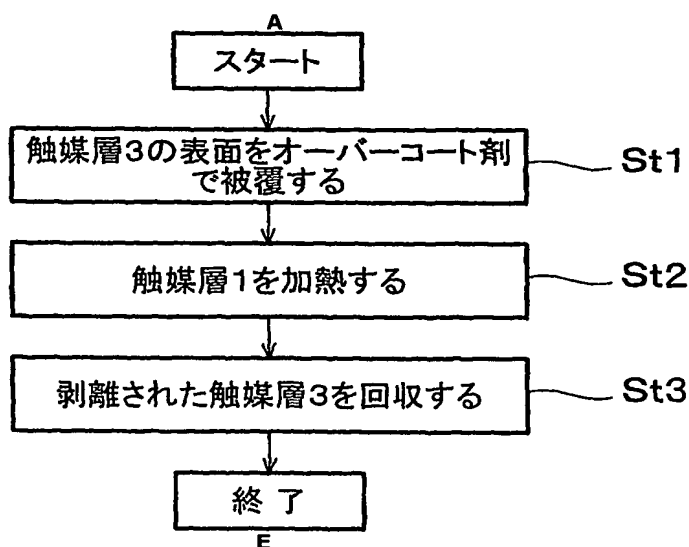
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/080596 A1

- (51) 国際特許分類: B01J 38/00
(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/003004
(22) 国際出願日: 2004 年 3 月 9 日 (09.03.2004)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ: 特願2003-063289 2003 年 3 月 10 日 (10.03.2003) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5718501 大阪府門真市大字門真1006番地 Osaka (JP).
(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 脇田 英延 (WAKITA, Hidenobu). 田口 清 (TAGUCHI, Kiyoshi).
(74) 代理人: 角田 嘉宏, 外 (SUMIDA, Yoshihiro et al.); 〒6500031 兵庫県神戸市中央区東町123番地の1 貿易ビル3階有古特許事務所 Hyogo (JP).
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, [続業有])

(54) Title: METHOD FOR RECOVERING CATALYST MATERIAL, CATALYST MATERIAL RECOVERED BY SAID RECOVERING METHOD, METHOD FOR RECOVERING SUBSTRATE, SUBSTRATE RECOVERED BY SAID RECOVERING METHOD

(54) 発明の名称: 触媒の回収方法及び当該回収方法により回収された触媒、基材の回収方法及び当該回収方法により回収された基材



A...START
St1...APPLYING OVERCOAT AGENT ON SURFACE OF CATALYST LAYER 3
St2...HEATING CATALYST STRUCTURE 1
St3...RECOVERING RELEASED CATALYST LAYER 3
E...END

(57) Abstract: A method for recovering a catalyst material from a catalyst structure having a substrate and, formed on at least a part of the surface thereof, a catalyst layer, characterized in that it comprises (a) a step of forming an overcoat layer on the surface of said catalyst layer, (b) a step of placing the catalyst structure having the overcoat layer thereon under conditions wherein the expansion or shrinkage property of said overcoat layer differs from that of said substrate, and in that said catalyst layer is released from said substrate due to the difference of the expansion or shrinkage property caused by said conditions.

(57) 要約: 本発明は、その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触媒体から触媒を回収する方法であって、(a) 当該触媒層の表面にオーバーコート層を形成するステップ、および (b) 当該オーバーコート層が呈する膨張性または収縮性と、当該基材が呈するそれとの間で相違が生じる条件下に、当該オーバーコート層が形成された触媒体をおくステップ、を有し、かつ当該条件下において生じた膨張性または収縮性の相違により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許容される。

WO 2004/080596 A1



SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

明 細 書

触媒の回収方法及び当該回収方法により回収された触媒、
基材の回収方法及び当該回収方法により回収された基材

5

〔技術分野〕

本発明は、セラミックスや金属で形成された基材上に担持された触媒
の回収方法、及び当該回収方法により回収された触媒に関する。また、
触媒層が形成された基材から基材を回収する方法、及び当該方法により
10 回収された基材に関する。

〔技術背景〕

車載用排ガス浄化触媒体や、燃料電池用水素精製触媒体の多くは、触
媒上流部（エンジンや水蒸気改質触媒部）に対し過剰な背圧がかかるの
15 を防ぐため、担体としてハニカム体が用いられる。ハニカム体は、コー
ジェライト等のセラミックス材料を押し出し成形することにより、また
は、Fe-Cr-Al系金属等からなる金属板をコルゲート加工することにより
形成される。通常、触媒層はこれらの担体基材の上に数ミクロン～数十
ミクロンの厚さで形成される。反応の用途にもよるが、通常触媒層とし
20 ては、触媒金属である貴金属（Pt、Pd、Rhなど）の粒子（直径1
～5 nm）を、高比表面積を有する担体（CeO₂担持アルミナ、アル
ミナ、セリアージルコニア、チタニア、ジルコニア、シリカなど）に担
持したものと、バインダー（アルミナ、ジルコニアなど）からなる。

使用済みとなった触媒体は、そのまま廃棄処理あるいはスクラップし
25 て処理することも可能であるが、貴金属は高価であるため、使用後の貴
金属は回収され、再利用されることが望ましい。

セラミックス担体基材を用いた場合は、溶解、固液分離などの工程を
経て貴金属が回収される。鈴木らの報告によると（例えば、鈴木雅仁、

J E T I , 4 6 , 5 6 (1 9 9 8) 参照)、これらの触媒体はまず (1) 貴金属含有量を決定するために粉碎し、サンプリングを行い、(2) セラミックスと貴金属を分離してから濃縮し、(3) 貴金属を相互に分離して貴金属の純度を高める工程からなる。

- 5 セラミックスと貴金属を分離する工程には、湿式法と乾式法があり、湿式法では貴金属を塩酸などの酸および硝酸などの酸化剤で溶解させ、固液分離することで担体基材であるセラミックスから分離し、その後、蒸発、還元、イオン交換などによって濃縮する。また、乾式法では、貴金属捕集材として鉄、銅、ニッケルなどのベースメタル、フラックスおよび還元剤と廃触媒を混合熔融して、貴金属をベースメタル中に濃縮するとともに、セラミックスをスラグ化して分離し、その後電解法、湿式溶解法、乾式法などによりベースメタルと貴金属の分離が行われる。
- 10

- 金属担体基材の場合は、粉碎がセラミックスほど容易でないため、触媒層を担体基材から剥離させた後、触媒を回収する方法が提案されている。例えば、硝酸水溶液中や過酸化水溶液中で加熱することにより担体基材から触媒層を剥離させた後触媒を回収する方法（例えば、特開平 3 - 1 5 4 6 4 0 号公報参照）、加熱した金属担体に水を噴射注入することにより担体基材から触媒層を剥離させた後触媒を回収する方法（例えば、特開平 1 1 - 1 5 8 5 6 3 号公報参照）、砥石に鉄粉を用いサンドブラストすることにより担体基材から触媒層を剥離させた後触媒を回収する方法（例えば、特開平 5 - 2 1 2 2 9 7 号公報参照）、投射材を含有した空気を投射することにより担体基材から触媒層を剥離させた後触媒を回収する方法（例えば、特開平 6 - 1 7 0 2 4 7 号公報参照）などがある。
- 15
- 20

- 25 しかし、従来の方法には以下に示すような課題があった。

従来、セラミックス担体基材を用いた触媒体では、触媒体を粉碎し、セラミックスから触媒層を分離するという工程が必要であったため回収率の低下の要因となっていた。また、粉碎により触媒層にセラミックス

が混ざってしまうので、貴金属のみの回収を行わずこれを再び触媒層に利用することは困難であった。また、担体は破壊されてしまうので、担体を再利用することはできなかった。

5 金属担体基材を用いた触媒体では、触媒層を金属担体基材から剥離してから回収することがあるが、従来の方法では、酸を用いるなど操作に危険を伴ったり、高圧水流やサンドブラストで触媒層を剥離したりするなど特別な設備が必要であった。また、過酸化水素などの薬液やサンドブラストの砥石など触媒層とは全く異なる材料が混入し、剥離後、これらを分離、または分解させることが必要になるという課題があった。

10

〔発明の開示〕

本発明は、セラミックスや金属等からなる担体基材に触媒層が担持された触媒体から触媒を回収するに当たって、十分な回収率を得ることができ、また、煩雑な精製工程を経ることなく、再利用できる状態で触媒
15 を回収する方法を提供することを目的とする。また、特別な装置を用いることなく、さらに担体基材を破壊しないで触媒を回収することができる回収方法を提供することを目的とする。

上記目的を達成するために、本発明は、その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触媒体から触媒を回収する方法であつて、（a）当該触媒層の表面にオーバーコート層を形成するステップ、
20 および（b）当該オーバーコート層が呈する膨張性または収縮性と、当該基材が呈するそれとの間で相違が生じる条件下に、当該オーバーコート層が形成された触媒体をおくステップ、を有し、かつ当該条件下において生じた膨張性または収縮性の相違により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許容される。
25

上記方法においては、前記触媒体を前記条件下においたときに、触媒層表面に形成された前記オーバーコート層と、前記基材とでは、膨張性又は収縮性が相違するので、オーバーコート層と基材とのかかる挙動の

差を、前記基材と前記触媒層との間に生じる剥離力として利用し、前記触媒層を前記基材から剥離することができる。ここでいう膨張性又は収縮性が相違するとは、一方が膨張し他方が収縮する場合、両者とも膨張するがその程度が異なる場合、両者とも収縮するがその程度が異なる場合、いずれをも含むとする。

上記方法は、好ましくは、前記ステップ（a）において、前記オーバーコート層は、硬化性を有するオーバーコート剤で前記触媒層の表面を被覆することにより形成し、前記ステップ（b）において、前記条件は、前記オーバーコート層が硬化する条件とする。オーバーコート層を硬化させると、触媒層との結着性が高くなり、オーバーコート層と基材との挙動の差により生じる力が、前記基材と前記触媒層との間にスムーズに作用し、ステップ（b）における剥離が容易に達成されることになる。

また、本発明は、その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触媒体から触媒を回収する方法であって、（a）当該触媒層の表面に硬化性を有するオーバーコート剤でオーバーコート層を形成するステップ、および（b）当該オーバーコート層が硬化する条件下に、当該オーバーコート層が形成された触媒体をおくステップ、を有し、かつ当該硬化により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許容される。

上記方法において、例えば、加熱、送風または室温での放置により硬化するオーバーコート剤を使用することができる。この場合、簡易な手段でオーバーコート層を硬化することができる。

前記オーバーコート剤の硬化性成分としては、無機系結合材を使用しうる。前記無機系結合材は、例えば、粘土、セメント、シリカゾル、アルミナゾル、チタニアゾル及びこれらの組合せからなる群から選択されうる。

また、前記オーバーコート剤の硬化性成分としては、有機化合物を使用しうる。前記有機化合物としては、例えば、多糖類、熱硬化性樹脂等の高分子化合物を使用することができる。多糖類の中でも、特にセルロ

ースを好ましく使用することができる。セルロースは加熱により硬化し、前記触媒層との間で高い結着性を示す。

前記オーバーコート剤の硬化性成分として、有機化合物を用いた場合、好ましくは、ステップ（b）の後、触媒層の表面に形成された前記オーバーコート層を加熱し、前記有機化合物を燃焼するステップ（c）をさらに有する。ステップ（c）を経ることにより、触媒作用を有さない有機化合物が除去されるので、回収される触媒は高い触媒作用を示す。

また、本発明は、上記方法において前記触媒層が金属酸化物を含有する場合、好ましくは、前記オーバーコート剤は同一の金属酸化物を含有する。上記方法においては、前記オーバーコート層中に前記触媒層と同じ金属酸化物が含まれるので、前記オーバーコート層と前記触媒層との結着性が非常に高くなり、触媒層と基材との境界部分に力が働きやすくなり、前記基材から前記触媒層が容易に剥離される。

上記方法において、前記金属酸化物として、例えばジルコニウム酸化物を用いることができる。

前記触媒層に貴金属を含む触媒体から触媒を回収する際に、本発明は好ましく適用される。貴金属は非常に高価であり、通常、貴金属の費用より、回収に要する費用の方がはるかに少なくて済むからである。

上記方法は、前記基材がセラミックスからなる場合、金属からなる場合、いずれの場合にも適用しうる。いずれの場合であっても、本発明の方法においては、基材を破碎することなく触媒が回収されるので、基材を再利用することも可能であり、コスト的に有利である。

また、本発明の触媒は、上記触媒の回収方法により回収された触媒である。

また、本発明の触媒は、上記触媒の回収方法により回収された触媒を粉碎したものを原料とする触媒である。

また、本発明は、その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触媒体から基材を回収する方法であって、（a）当該触媒層

の表面に硬化性を有するオーバーコート剤でオーバーコート層を形成するステップ、および（b）当該オーバーコート層が硬化する条件下に、当該オーバーコート層が形成された触媒体をおくステップ、を有し、かつ当該硬化により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許容される。

- 5 また、本発明の基材は、上記基材の回収方法により回収された基材である。

本発明の上記目的、他の目的、特徴、及び利点は、添付図面参照の下、以下の好適な実施態様の詳細な説明から明らかにされる。

10 〔図面の簡単な説明〕

図 1 は、本実施形態で用いられる触媒体の一部を模式的に示す断面図である。

図 2 は、本実施形態の触媒回収方法のフローチャートである。

15 〔発明を実施するための最良の形態〕

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。

図 1 は、本実施形態で用いられる触媒体の一部を模式的に示す断面図である。図 2 は、本実施形態の触媒回収方法のフローチャートである。

- 20 図 1 に示すように、本実施形態では、まずコージェライト（ $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$ ）や金属からなるハニカム体である基材 2 の表面に触媒層 3 が形成されている触媒体 1 を用いる。

- 25 図 2 に示すように、本実施形態の回収方法では、まず触媒層 3 の表面を、液状もしくはスラリー状のオーバーコート剤で被覆する（S t 1）。オーバーコート剤の被覆は、例えば触媒体 1 をオーバーコート剤中に浸漬することによる。また、基材の形状はハニカム形状に限定されることはなく、例えば、板状やコルゲート形状であっても良い。基材が板状である場合や、その他スプレー塗布などが可能な形状の場合は、触媒層表面にオーバーコート剤を塗布してもよい。オーバーコート剤の被覆によ

り、触媒体 1 の触媒層 3 の表面にオーバーコート層が形成される。

上記工程によりオーバーコート層を形成した後、触媒体 1 を加熱し、オーバーコート層を硬化させる（S t 2）。オーバーコート層の硬化により、触媒層 3 とオーバーコート層が結着されるとともに、触媒層 3 が
5 基材から剥離される。剥離された触媒層 3 は、回収され、例えば触媒層の原料として再利用される（S t 3）。

本実施形態では、オーバーコート剤として、加熱により硬化し、硬化に伴って触媒層 3 が基材 2 から剥離される材料を用いる。好ましくは、硬化する条件下において、オーバーコート層が呈する膨張性または収縮
10 性と、基材 2 が呈するそれとの間で相違が生じる材料を用いる（以下、このことをオーバーコート層と基材 2 との挙動の差ともいう）。このような材料を用いると、前記した挙動の差によって生じる力を、触媒層 3 と基材 2 との間に働かせ、その力により触媒層 3 を基材 2 から容易に剥離させることができる。

15 なお、所定の条件下で、オーバーコート層が呈する膨張性または収縮性と、基材 2 が呈するそれとの間で相違が生じる材料であって、かかる挙動の差を、触媒層 3 の剥離に利用できる材料であれば硬化しない材料であってもオーバーコート剤として用いることができる。

ただし、オーバーコート剤として硬化性を有する材料を用いると、オ
20 ーバーコート層と触媒層 3 との結着性を高めることができ、前記した挙動の差によって生じる力が、触媒層 3 と基材 2 との境界部分に集中しやすくなり、触媒層 3 の剥離が容易となるので好ましい。オーバーコート剤は、触媒層 3 との結着性が高い程好ましい。

また、オーバーコート剤は、上述のように、加熱により硬化する材料
25 に限定されることなく、例えば送風、室温での放置により硬化する材料を用いることもできる。使用するオーバーコート剤の性質に応じて、上記加熱工程に変えて、触媒層 3 の剥離が生じる条件下に触媒体 1 をおく。加熱、送風又は室温での放置等によりオーバーコート剤が硬化する機構

としては、乾燥による場合、水和結合による場合等がある。

オーバーコート層は、厚い程触媒層 3 の剥離に寄与する力が大きくなるので好ましい。

硬化性を有するオーバーコート剤の材料としては、例えば無機系結合材を含む材料を用いることができる。無機系結合材は、シリカゾル、アルミナゾル、チタニアゾルなどのコロイドや、粘土系化合物、セメント及びこれらの組合せからなる群から選択されうる。セメントとしては、セッコウ等の気硬性セメントが好ましく用いられる。無機系結合材は、水などの溶剤に分散させ、オーバーコート剤として用いる。シリカゾルは、加熱によりゲル化させると収縮し、その収縮の程度が大きいので、オーバーコート剤の成分として好ましく用いられる。

また、例えば、触媒層 3 中に含まれる担体（アルミナ、シリカ、ジルコニアなど）もしくはバインダーと同じ金属酸化物を含むオーバーコート剤を用いても良い。この場合、触媒層 3 とオーバーコート層の結着性を高めることができ、したがって触媒層 3 の剥離が容易となる。例えば、触媒層 3 がジルコニウム酸化物を含んでいる場合に、オーバーコート剤としてジルコニアゾルを用い、加熱することにより、オーバーコート層をジルコニアとし、オーバーコート層と触媒層 3 とを高い結着力で結着させて触媒層 3 を基材 2 から剥離させる方法などが挙げられる。

近年、車載用排ガス浄化触媒体や燃料電池用シフト触媒体の触媒層としてセリウムとジルコニウムの複合酸化物を担体とした貴金属触媒が幅広く用いられているが、ジルコニウム酸化物を担体を含む場合、触媒層 3 と基材 2 との結着性が低い。したがって、触媒層 3 の剥離に要する力が少なくて済む。このため、ジルコニウム酸化物を担体として触媒層 3 に用いた触媒体 1 において、特に本発明を効果的に適用しうる。なお、本発明は触媒層 3 が貴金属を含む場合に多く用いられる。貴金属を簡易な方法で回収できたら、コスト的に有利であるからである。

また、オーバーコート剤としては、硬化性を有する高分子化合物を主

成分として用いても良い。この場合、オーバーコート層が結着された状態で剥離された触媒層 3 を高温で燃焼すると、高分子化合物が酸化分解され、オーバーコート層を除去することができるので、煩雑な工程を経ることなく、高い触媒作用を有する原料を回収することができる。高分子化合物としては、多糖類や熱硬化性樹脂を用いることができる。具体的には、セルロース化合物を分散させた水溶液や、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂などの原料液をオーバーコート剤として用いることができる。

基材 2 から剥離された触媒層 3 は、触媒原料として再利用することができる。とくに、オーバーコート層を触媒層 3 と同じ材料とした場合や、オーバーコート層を燃焼させ除去した場合は、回収による触媒作用の低下を抑えることができるという観点から好ましい。回収した触媒層 3 は、乾式粉碎や湿式粉碎し、またはそのまま、触媒原料もしくは触媒スラリーにすることができ、再利用が容易となる。触媒層 3 が剥離された基材 2 も再利用することができる。

以下に具体的な実施例を示す。

(実施例 1)

触媒として $2 \text{ wt} \% \text{ Pt} / \text{Ce}_{0.5} \text{Zr}_{0.5} \text{O}_x$ 、結合材としてジルコニアを含む触媒層を、コージェライトハニカム体表面に薄く形成し触媒体とした。続いて、この触媒体をオーバーコート剤である $5 \text{ wt} \%$ ジルコニアゾルに含浸させた後、 900°C で 120 分間焼成した。冷却後、ハニカム体に担持された触媒層は剥離し、長さ $1 \sim 5 \text{ mm}$ 、幅 $0.2 \sim 1 \text{ mm}$ の針状の触媒層がハニカム体から落ちているのが確認された。ハニカム体のセル内に残っている触媒層をさらに回収するため、触媒体にエアブローしたところ、ハニカム体のセル内の触媒をほぼ完全に回収した。触媒層が剥離されたコージェライトハニカム体も回収した。

(実施例 2)

ハニカム体として、実施例 1 のコージェライトハニカム体の代わりに、

F e - C r - A l 系のコルゲート形状の金属ハニカム体を用いた。後は、実施例 1 と同様の方法で実験を行った。この結果、実施例 1 と同様に触媒層を回収できた。また、触媒体にエアブローしたところ、ハニカム体のセル内に残っている触媒をほぼ完全に回収した。触媒層が剥離されたコージェライトハニカム体も回収した。

(実施例 3)

触媒として $2 \text{ wt } \% \text{ Pt } / \text{ Ce }_{0.5} \text{ Zr }_{0.5} \text{ O}_x$ を、結合材としてジルコニアを含む触媒層を、実施例 2 と同様に F e - C r - A l 系のコルゲート形状の金属ハニカム体表面に薄く形成し触媒体とした。つづいて、この触媒体を、オーバーコート剤である $5 \text{ wt } \%$ のヒドロキシエチルセルローズ水溶液に含浸させた後、 150°C で 6 時間乾燥させた。その結果、触媒層は剥離した。また、剥離した触媒層を 900°C で 120 分間焼成したところ、ヒドロキシエチルセルローズが燃焼したことが重量変化から確認された。

(実施例 4)

基材として板状の金属担体基材を用い、触媒体を作製した。触媒層の組成、及び触媒層の形成方法は実施例 2 と同様とした。触媒体をオーバーコート剤である不飽和ポリエステル原料液に浸漬させた後、 900°C で 120 分間焼成した。かかる工程により、触媒層は完全に基材から剥離し、また不飽和ポリエステル層も除去された。

(実施例 5)

基材として板状の金属担体基材を用い、触媒体を作製した。触媒層の組成、及び触媒層の形成方法は実施例 2 と同様とした。オーバーコート剤としてペントナイトを水で分散させたスラリーを用い、触媒体をオーバーコート剤中に浸漬させた。オーバーコート剤含浸後、触媒体を 600°C で 120 分間焼成した。触媒層は完全に基材から剥離した。

(実施例 6)

基材として板状の金属担体基材を用い、触媒体を作製した。触媒層の

組成、及び触媒層の形成方法は実施例 2 と同様とした。オーバーコート剤として気硬性セメントの一種であるセッコウを水で分散させたスラリーを用い、触媒体をオーバーコート剤中に含浸させた。オーバーコート剤含浸後、触媒体を室温（25℃）に3日間放置することにより乾燥させた。乾燥後触媒層は完全に基材から剥離した。

（実施例 7）

基材として板状の金属担体基材を用い、触媒体を作製した。触媒層の組成、及び触媒層の形成方法は実施例 2 と同様とした。オーバーコート剤としてシリカゾル、アルミナゾル、チタニアゾルをそれぞれ用いて、オーバーコート剤に浸漬させた3種の触媒体を用意した。それぞれの触媒体を室温（25℃）に3日間放置して乾燥させた後、500℃で120分間焼成した。触媒層が剥離するまで、上述のオーバーコート剤への浸漬処理と、焼成処理を繰り返し行った。

オーバーコート剤としてシリカゾルを用いた触媒体は2回、アルミナゾルを用いた触媒体は4回、チタニアゾルを用いた触媒体は4回の繰り返し処理を行ったところ、触媒層は基材から剥離した。

（実施例 8）

実施例 1 とは、焼成温度が650℃である点以外は同一の処理を行って剥離させた触媒層（ $\text{Pt} / \text{Ce}_{0.5} \text{Zr}_{0.5} \text{O}_x$ ）を、アルミナゾル、水とともに混合しボールミルで粉碎し触媒スラリーを作成した。このスラリーを用いて、実施例 2 で回収した金属ハニカム体に触媒層を形成し、触媒体を作製した。この触媒体を用いて、一酸化炭素の酸化反応を行ったところ触媒温度200℃において酸化反応が起きているのが確認された。

以上のように本発明の触媒回収方法を用いることにより、特殊な装置など必要とせず簡単な方法で触媒層をハニカム体などの基材から剥離させ、高い回収率で回収することができる。回収された触媒は、特別な精製処理を行うことなく、触媒層の原料として使用することができる。ま

た、触媒層が剥離された基材も、回収し、再利用することができる。

上記説明から、当業者にとっては、本発明の多くの改良や他の実施形態が明らかである。従って、上記説明は、例示としてのみ解釈されるべきであり、本発明を実行する最良の態様を当業者に教示する目的で提供
5 されたものである。本発明の精神を逸脱することなく、その構造及び／又は機能の詳細を実質的に変更できる。

〔産業上の利用の可能性〕

本発明に係る触媒の回収方法は、車載用排ガス浄化用や、燃料電池用
10 等に使用される触媒体から触媒を回収する際に有用である。

請 求 の 範 囲

1. その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触媒
5 体から触媒を回収する方法であって、以下のステップ、すなわち；

（a）当該触媒層の表面にオーバーコート層を形成するステップ、および

- （b）当該オーバーコート層が呈する膨張性または収縮性と、当該基
材が呈するそれとの間で相違が生じる条件下に、当該オーバーコート層
10 が形成された触媒体をおくステップ、

を有し、かつ当該条件下において生じた膨張性または収縮性の相違により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許容されることを特徴とする触媒の回収方法。

- 15 2. 前記ステップ（a）において、前記オーバーコート層は、硬化性を有するオーバーコート剤で前記触媒層の表面を被覆することにより形成し、

前記ステップ（b）において、前記条件は、前記オーバーコート層が硬化する条件である、

- 20 請求の範囲第1項に記載の触媒の回収方法。

3. その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触媒
体から触媒を回収する方法であって、以下のステップ、すなわち；

- （a）当該触媒層の表面に硬化性を有するオーバーコート剤でオーバ
25 ーコート層を形成するステップ、および

（b）当該オーバーコート層が硬化する条件下に、当該オーバーコート層が形成された触媒体をおくステップ、

を有し、かつ当該硬化により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許

容されることを特徴とする触媒の回収方法。

4. 前記ステップ（b）において、前記条件は、加熱、送風または室温での放置である、請求の範囲第3項に記載の触媒の回収方法。

5

5. 前記オーバーコート剤は無機系結合材を含む、請求の範囲第3項に記載の触媒の回収方法。

6. 前記無機系結合材は粘土、セメント、シリカゾル、アルミナゾル、
10 チタニアゾル及びこれらの組合せからなる群から選択される、請求の範囲第5項に記載の触媒の回収方法。

7. 前記オーバーコート剤は有機化合物を含む、請求の範囲第3項に記載の触媒の回収方法。

15

8. 前記有機化合物は高分子化合物である、請求の範囲第7項に記載の触媒の回収方法。

9. 前記高分子化合物はセルロースである、請求の範囲第8項に記載の
20 触媒の回収方法。

10. ステップ（b）の後、触媒層の表面に形成された前記オーバーコート層を加熱し、前記有機化合物を燃焼するステップ（c）をさらに有する、請求の範囲第7項に記載の触媒の回収方法。

25

11. 前記触媒層は金属酸化物を含有し、前記オーバーコート剤は前記金属酸化物を含有する、請求の範囲第3項に記載の触媒の回収方法。

1 2. 前記金属酸化物は、ジルコニウム酸化物である、請求の範囲第 1
1 項に記載の触媒の回収方法。

1 3. 前記触媒層は貴金属を含む、請求の範囲第 3 項に記載の触媒の回
5 収方法。

1 4. 前記基材はセラミックスまたは金属からなる、請求の範囲第 3 項
に記載の触媒の回収方法。

10 1 5. 請求の範囲第 1 項乃至 1 4 項いずれかに記載の触媒の回収方法に
より回収された触媒。

1 6. 請求の範囲第 1 項乃至 1 4 項いずれかに記載の触媒の回収方法に
より回収された触媒を粉碎したものを原料とする触媒。

15

1 7. その表面の少なくとも一部に触媒層が形成された基材からなる触
媒体から基材を回収する方法であって、以下のステップ、すなわち；

(a) 当該触媒層の表面に硬化性を有するオーバーコート剤でオーバ
ーコート層を形成するステップ、および

20 (b) 当該オーバーコート層が硬化する条件下に、当該オーバーコー
ト層が形成された触媒体をおくステップ、

を有し、かつ当該硬化により、当該基材からの当該触媒層の剥離が許
容されることを特徴とする基材の回収方法。

25 1 8. 請求の範囲第 1 7 項に記載の基材の回収方法により回収された基
材。

1 / 2

図 1

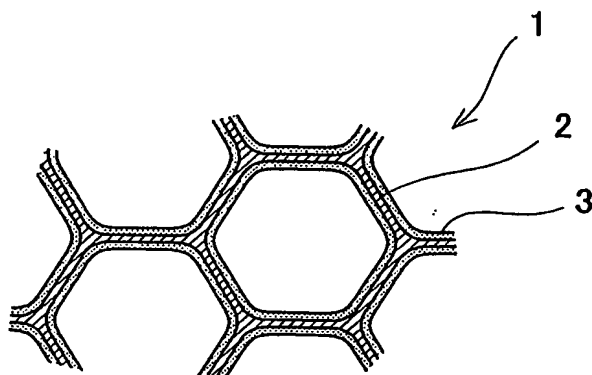
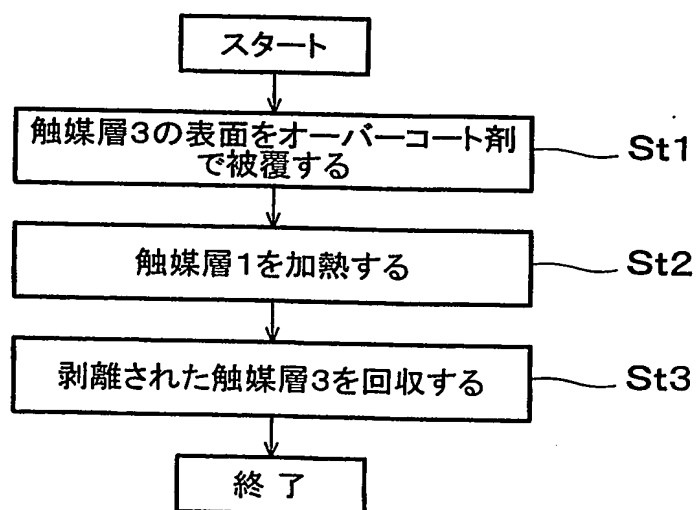


図 2



2 / 2

参照符号一覧表

- | | |
|---|-----|
| 1 | 触媒体 |
| 2 | 基材 |
| 3 | 触媒層 |